

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 06-191851

(43)Date of publication of application : 12.07.1994

(51)Int.Cl. C01G 43/01  
G21C 21/02

(21)Application number : 04-344016

(71)Applicant : NUCLEAR FUEL IND LTD

(22)Date of filing : 24.12.1992

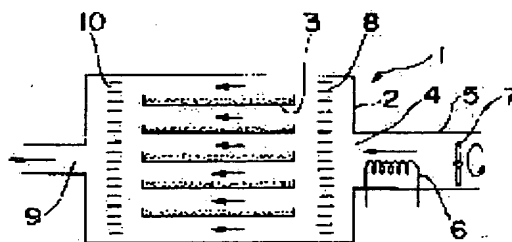
(72)Inventor : YOSHIMUTA HIDEJI

## (54) PRODUCTION OF URANIUM TRIOXIDE PARTICLE AND PRODUCING DEVICE THEREFOR

## (57)Abstract:

PURPOSE: To produce a uniform  $UO_3$  particle without generating crack or defects by blowing a hot air to ammonium biuranate particle housed in a specific vessel for calcining from one direction in an electric furnace.

CONSTITUTION: In a  $UO_3$  producing device 1, the air heated by an electric heater 6 is fed to a heating furnace 2 from a hot air feeding opening 4 by a blower 7, is adjusted the blowing direction by a blowing direction adjusting blades 8 and 10, flows to the vessel 3 for calcining and, after passing through the vessel 3 for calcining, is discharged from a hot air discharge opening 9 out of heating furnace 2. At this time, the vessel 3 for calcining is arranged in hot air flow formed between the hot air feeding opening 4 and the hot air discharge opening 9 and the ammonium biuranate particle is decomposed into  $UO_3$  by the hot air. The contained high molecular materials therein are decomposed by heating, the heat generated by the thermal decomposition is cooled by the hot air flow and heat accumulation in the ammonium biuranate particle is prevented.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 22.03.1995

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 2644661

[Date of registration] 02.05.1997

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

\* NOTICES \*

JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

---

CLAIMS

---

[Claim(s)]

[Claim 1] The manufacture approach of the uranium trioxide particle characterized by ventilating the heavy uranic acid ammonium particle put into the container for roast from an one direction in hot blast within a heating furnace.

[Claim 2] The manufacturing installation of the uranium trioxide particle characterized by having a hot blast supply means to supply hot blast from it being fixed towards the container for roast arranged multistage, and said container for roast in a furnace.

[Claim 3] Said roast container is the manufacturing installation of said uranium trioxide particle according to claim 2 which comes to form in the field holding a heavy uranic acid ammonium particle group that passage of hot blast is possible, and the opening which cannot pass a uranium trioxide particle.

[Claim 4] The manufacturing installation of the uranium trioxide particle characterized by having a hot blast supply means to supply hot blast from it being fixed towards the container for roast with that passage is possible and the opening which cannot pass a uranium trioxide particle and said container for roast of hot blast while being arranged pivotable in a furnace.

---

[Translation done.]

## \* NOTICES \*

JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

## DETAILED DESCRIPTION

## [Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Industrial Application] About the manufacture approach of a uranium trioxide particle, and its equipment, in more detail, this invention makes easy the temperature control at the time of the roast in a uranium trioxide particle production process, and relates to the manufacture approach of the uranium trioxide particle which can prevent the crack of a uranium trioxide particle, and generating of a defect, and its manufacturing installation.

[0002]

[Description of the Prior Art] Conventionally, the following approaches are learned as a process which manufactures the spherical uranium-dioxide (UO<sub>2</sub>) particle constructed across a high temperature gas cooled reactor etc.

[0003] First, after making the drop of an uranyl nitrate gel in an ammonia nature water solution, generating a heavy uranic acid ammonium particle and drying this, it roasts over about 400-600 degrees C in air, and considers as a uranium trioxide (UO<sub>3</sub>) particle.

[0004] UO<sub>3</sub> finally a particle returns, and sinters [ at about 1,600 degrees C ] among a hydrogen ambient atmosphere and is spherical — UO<sub>2</sub> It becomes a particle.

[0005] In order to make generation of a drop easy, high molecular compounds, such as polyvinyl alcohol and a polyethylene glycol, are added to an uranyl nitrate, and viscosity etc. is usually adjusted.

[0006] For this reason, since the particle itself generates heat with the heat of decomposition of the high molecular compound in a heavy uranic acid ammonium particle at the time of roast, this makes difficult the temperature control at the time of roast, and it is UO<sub>3</sub> further. They are the crack of a particle, and the cause of a defect.

[0007] As shown in drawing 7, in the case of the conventional electric furnace 20 for roast, the heavy uranic acid ammonium particle 22 is held on the tray 21 for roast installed in the shape of a plate in the electric furnace 20 for roast, and said heavy uranic acid ammonium particle 22 is heated and roasted over the heating heater 23 arranged by head lining, base, and inner circle wall of the electric furnace 20 for roast, respectively, and it is UO<sub>3</sub>. It is made a particle. The temperature control at the time of roast, especially a programming rate change with the classes and additions of a high molecular compound.

[0008] for example, to the weight of uranium, it is comparatively alike, and the temperature up of the case of the heavy uranic acid ammonium particle prepared by [ 20% of the weight of ] adding polyvinyl alcohol is carried out from a room temperature to 450 degrees C in about 6 - 7 hours so that it may become. Even if it lengthens a heating up time more than this, the problem on quality does not arise.

[0009] If a temperature up is carried out to about 380 degrees C with the above-mentioned programming rate, a heavy uranic acid ammonium particle will turn into a uranium trioxide (UO<sub>3</sub>) particle, and if a temperature up is carried out even to about 600 degrees C too much, it will become a triuranium octoxide (U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>) particle.

[0010] On the other hand, it is UO<sub>3</sub>. UO<sub>2</sub> UO<sub>3</sub> since a crack will tend to enter if there is much carbon when carrying out It is desirable to lower the amount of carbon residue in a particle to 100 ppm, and, for that purpose, it is desirable to carry out a temperature up to 450-550 degrees C which is said temperature higher than 380 degrees C.

[0011] However, decomposition begins from about 150 degrees C, and, as for the high molecular compound in a heavy uranic acid ammonium particle, the heavy uranic acid ammonium particle itself generates heat with the heat of decomposition at this time.

[0012] Although the example of the differential thermal analysis when roasting a heavy uranic acid ammonium particle over drawing 10 was shown, the exothermic peak is about 170 degrees C.

[0013] As shown in drawing 8, when the laminating of the heavy uranic acid ammonium particle 22 is thickly carried out to five or more layers, it is roasted over them and whenever [ electric furnace internal temperature ] is 170 degrees C, the temperature around the heavy uranic acid ammonium particle 21 near the lowest layer rises rapidly to about 250-300 degrees C by own generation of heat of a heavy uranic acid ammonium particle. By this rapid temperature rise, a heavy uranic acid ammonium particle breaks, or a defect generates it.

[0014] Then, as shown in drawing 9, in the former, preventing stagnation of heat is performed by carrying out the laminating of the heavy uranic acid ammonium particle 22 on the tray 21 for roast to 1 - two-layer extent thinly.

[0015] However, since the gross area of the tray 21 for roast increases in this case and the number of the plates in an electric furnace increases, content volume of an electric furnace must be enlarged enough. Consequently, the inside of an electric furnace can be heated to homogeneity (soak nature), and this is UO<sub>3</sub>. It is the cause which demotes the quality of a particle.

[0016] Moreover, the conventional tray for roast has a monotonous tray bottom plate, and further, this causes an increment in the gross area of the tray for roast, and causes [ of the soak nature in a furnace ] a fall.

[0017] Furthermore, since it is the electric furnace of a free convection mold in the case of the electric furnace for roast shown in drawing 7, it is difficult to raise the soak nature in a furnace, and it tends to be influenced of the heat of decomposition of the high molecular compound in a particle.

[0018] This invention is made based on said situation.

[0019] Namely, the purpose of this invention controls the rapid temperature rise in the electric furnace at the time of roast, and is UO<sub>3</sub>. The crack of a particle and generating of a defect are prevented and it is uniform UO<sub>3</sub>. UO<sub>3</sub> which can manufacture a particle It is in offering the manufacture approach of a particle, and its equipment.

[0020]

[Means for Solving the Problem] Invention according to claim 1 for solving said technical problem is the manufacture approach of the uranium trioxide particle characterized by ventilating the heavy uranic acid ammonium particle put into the container for roast from an one direction in hot blast within a heating furnace.

[0021] Invention according to claim 2 is the manufacturing installation of the uranium trioxide particle characterized by having a hot blast supply means to supply hot blast from it being fixed towards the container for roast arranged multistage, and said container for roast in a furnace.

[0022] Invention according to claim 3 is a manufacturing installation of said uranium trioxide particle according to claim 2 which comes to have that passage of hot blast is possible for said roast container on the base, and the opening which cannot pass a uranium trioxide particle.

[0023] Invention according to claim 4 is the manufacturing installation of the uranium trioxide particle characterized by having a hot blast supply means to supply hot blast from it being fixed towards the container for roast with that passage is possible and the opening which cannot pass a uranium trioxide particle and said container for roast of hot blast while being arranged pivotable in a furnace.

[0024] Hereafter, this invention is explained in more detail.

[0025] The heavy uranic acid ammonium particle used as a raw material can be obtained using an approach better known than before.

[0026] For example, the undiluted solution which has desired viscosity is first prepared by adding high molecular compounds, such as polyvinyl alcohol and a polyethylene glycol, to an uranyl nitrate as a binder.

[0027] The undiluted solution of this uranyl nitrate is dropped for example, from an oscillating nozzle, and the drop of an uranyl nitrate is generated, for example, it is made to gel in an ammonia nature water solution. If it dries after gelation, the spherical heavy uranic acid ammonium particle whose diameter is about 1.0-2.0mm will be obtained. However, the diameter of this heavy uranic acid ammonium particle is determined by the diameter of the spherical uranium-dioxide particle which is a final product, and the uranium concentration in a dropping undiluted solution. For example, if the dropping undiluted solution of 220 gU/liter uranium concentration is used in order to manufacture a spherical uranium-dioxide particle with a diameter of 0.6mm, the diameter of a heavy uranic acid ammonium particle will be set to about 1.8mm.

[0028] In the approach of this invention, said heavy uranic acid ammonium particle is roasted by spraying hot blast on the heavy uranic acid ammonium particle held in the container for roast arranged in a heating furnace from an one direction compulsorily.

[0029] As for the temperature of the hot blast sprayed on a heavy uranic acid ammonium particle, being controlled proper is desirable.

[0030] In the approach of this invention, control of the temperature of hot blast means controlling the programming rate of hot blast, and controlling the temperature of hot blast to maintain to the temperature which set up the maximum temperature of hot blast.

[0031] About the programming rate of hot blast, when hot blast temperature is about 170 degrees C so that the result of the suggestion thermal analysis of drawing 10 may also show, for example, with the heat of decomposition of additives, such as a binder, temperature may rise quickly and a heavy uranic acid ammonium particle may amount even to about 250 degrees C - 350 degrees C. While the heavy uranic acid ammonium particle is carrying out the temperature rise unusually, this heavy uranic acid ammonium particle will be relatively cooled by hot blast.

[0032] Although it changes with the class of additive which makes the start the binder in a heavy uranic acid ammonium particle, or its additions, its calorific value of a heavy uranic acid ammonium particle is so large that a sudden rise of the temperature of heavy uranic acid ammonium has so many additions that the polymerization degree of the macromolecule resin compound which is a binder is high, speaking generally. Therefore, when the temperature of the heavy uranic acid ammonium particle which contains such a giant-molecule resin compound as a binder rises abruptly, in order to control this rapid temperature rise, it is important to adjust the rate of temperature rise of hot blast suitably so that a heavy uranic acid ammonium particle can be cooled by hot blast. For example, the programming rate of hot blast is lowered, a heavy uranic acid ammonium particle is cooled, and you may make it gather the programming rate of hot blast after progress of predetermined time near about 170 degree C used as the exothermic peak of a heavy uranic acid ammonium particle. since roast of a heavy uranic acid ammonium particle is performed per batch and the roast of one batch should just complete it within 24 hours, the degree of freedom which boils and changes various temperature up patterns of hot blast is comparatively large. And it can be suitably chosen according to the scale of the quality of a heavy uranic acid ammonium particle, an amount, and a heating furnace etc. how a temperature up pattern is set up.

[0033] The maximum temperature of hot blast is UO<sub>3</sub>. It is required to be the temperature which can lower the

amount of carbon residue of a particle to 100 ppm or less, and it is the temperature within the limits which are usually 450–550 degrees C. if a maximum temperature exceeds 600 degrees C — UO<sub>3</sub> U<sub>3</sub> O<sub>8</sub> quality by the heavy uranic acid ammonium particle of that presentation, if the amount of carbon residue is 100 ppm or more at this time, since it begins to become — spherical — UO<sub>2</sub> It becomes difficult to manufacture a particle.

[0034] In addition, effect does not have an about  $\pm 5$ -degree C error in the quality of a product to laying temperature.

[0035] Since it is based on the amount of the heavy uranic acid ammonium particle which it is going to roast, the heating time of the heavy uranic acid ammonium particle by hot blast cannot generally be determined. In short, while burning the high polymer in a heavy uranic acid ammonium particle, heavy uranic acid ammonium is UO<sub>3</sub>. It is good to decide on sufficient time amount to be decomposed suitably.

[0036] Although based also on the amount of the heavy uranic acid ammonium particle which it is going to roast as a rate of flow of hot blast, it is usually 2 – 10 cm/sec. If the rate of flow of hot blast is within the limits of this, on the occasion of the roast of a heavy uranic acid ammonium particle, the accumulation by combustion of the high polymer in a heavy uranic acid ammonium particle is effectively removable. Moreover, if the rate of flow of hot blast is smaller than 2 cm/sec, when the heavy uranic acid ANNIUMU particle to roast can be cooled effectively, and it may become and the rate of flow will exceed 10 cm/sec on the other hand, the technical implications which enlarge the rate of flow may be unable to be found out.

[0037] Although there is no limit, when it changes into the condition of having extended the heavy uranic acid ammonium particle group to the even field, for example and is arranged in a heating furnace especially as a direction on which hot blast is sprayed to a heavy uranic acid ammonium particle, it is good to determine the ventilation direction of hot blast so that hot blast may pass in parallel with the even field.

[0038] Hot blast is good to spray a heavy uranic acid ammonium particle so that the inside of a heating furnace may be blown, or so that it may circulate within a heating furnace.

[0039] Roast of this heavy uranic acid ammonium particle is usually performed by the oxidizing atmosphere. As the oxidizing atmosphere, an air ambient atmosphere or the mixed-gas ambient atmosphere of oxygen and other inert gas can be mentioned. But in the usual case, air is chosen as an oxidizing atmosphere at the time of roast. Therefore, it is usually heating air also as hot blast.

[0040] Especially if predetermined temperature is realizable as a heating means for forming hot blast, there is no limit and the usual electric heater etc. can be mentioned.

[0041] Next, the suitable manufacturing installation of this invention to enforce the approach of this invention is explained, referring to a drawing.

[0042] As shown in drawing 1, the manufacturing installation 1 of the uranium trioxide particle which is an example of this invention arranges two or more containers 3 for roast in a heating furnace 2.

[0043] This container for roast is arranged in the shape of a plate within a heating furnace. Moreover, as shown in drawing 3, it is desirable [ the container ] to come to have opening 3B which enables gaseous circulation while making impossible passage of the uranium trioxide generated to the field holding heavy uranic acid ammonium particle 3A of this container 3 for roast. Only by spraying hot blast on the heavy uranic acid ammonium particle held in the container for roast, even if said opening is not established especially in the field holding the heavy uranic acid ammonium particle in the container for roast. Although the accumulation by combustion of the high polymer which exists in a heavy uranic acid ammonium particle is removable If said opening is established in the field holding a heavy uranic acid ammonium particle as mentioned above, when the hot blast which invaded from the opening circulates between heavy uranic acid ammonium particles, said accumulation can be removed much more effectively.

[0044] As a container for roast which has such an opening For example, the dished or plate-like container which comes to prepare many through tubes of the magnitude which cannot pass a uranium trioxide particle in the even base in which a heavy uranic acid ammonium particle is held, Opening of a large area is prepared in the even base in which a heavy uranic acid ammonium particle is held. Dished [ which it comes to form at the dished or plate-like container which comes to stretch the wire gauze which has the eye of the magnitude which cannot pass a uranium trioxide particle, and the wire gauze which has the eye which cannot pass a uranium trioxide particle ], the shape of a cage, a tubed container, etc. can be mentioned to the opening.

[0045] Moreover, although standing of this container for roast may be carried out to the shape of a plate into the heating furnace as shown in drawing 1, it may rock the dished or plate-like container for roast, for example depending on the case, and you may make it rotate the container for roast focusing on that axial center in a tubed container.

[0046] As shown in drawing 1, as for the manufacturing installation 1 of a uranium trioxide particle, the hot blast ventilation opening 4 is formed in one wall of the heating furnace 2. The hot blast ventilation room 5 is following the hot blast ventilation opening 4. In the hot blast ventilation room 5, an electric heater 6 and a blower fan 7 are arranged. That amount of energization is controlled by the control unit which this electric heater 6 does not illustrate. Therefore, the hot blast of desired temperature can be ventilated now in a heating furnace 2 from the inside of this hot blast ventilation room 5.

[0047] As shown in drawing 1, the ventilation direction accommodation wing 8 is arranged between the heating furnace wall which formed said hot blast ventilation opening 4 in the manufacturing installation 1 of a uranium trioxide particle, and said container 3 for roast. It is made to be sprayed in hot blast by this ventilation direction accommodation wing 8 at all of two or more containers for roast arranged in the shape of a plate at homogeneity.

[0048] As shown in drawing 1, the hot blast exhaust port 9 is formed in the wall which faces to the heating furnace wall which formed said hot blast ventilation opening 4 in the manufacturing installation 1 of a uranium trioxide particle. And another ventilation direction accommodation wing 10 is installed between this hot blast exhaust port 9 and the container 3 for roast.

[0049] In the manufacturing installation 1 of the uranium trioxide particle of the above-mentioned configuration, the air heated by the electric heater 6 is sent out in a heating furnace 2 from the hot blast ventilation opening 4 with a blower fan 7, the hot blast which had the ventilation direction adjusted by the ventilation direction accommodation wings 8 and 10 circulates toward the container 3 for roast, and the hot blast which passed the container 3 for roast passes out of the heating furnace 2 from the hot blast exhaust port 9.

[0050] At this time, it will be arranged by the container 3 for roast in the air current of the hot blast formed between the hot blast ventilation opening 4 and the hot blast exhaust port 9, and a heavy uranic acid ammonium particle is heated by hot blast. Heating decomposes the high polymer in heavy uranic acid ammonium. The heating value generated by the pyrolysis is cooled by the hot blast air current, and carrying out accumulation into a heavy uranic acid ammonium particle is prevented.

[0051] Since hot blast is supplied in a heating furnace from the outside of a heating furnace and the hot blast in a heating furnace is discharged out of a heating furnace, the manufacturing installation of the mode shown in drawing 1 can be said to be the manufacturing installation of a hot blast one through mold. The manufacturing installation of the uranium trioxide particle of this invention is not limited to the manufacturing installation of the method shown in drawing 1. For example, it is equipment with which the manufacturing installation of a hot blast cycloid type as shown in drawing 2 can also enforce the approach of this invention suitably.

[0052] As shown in drawing 2, the place where the manufacturing installation of a uranium trioxide particle is different from the manufacturing installation shown in drawing 1 is that hot blast ventilation opening and a hot blast exhaust port are not prepared in a heating furnace wall, but hot blast ventilation opening 4a and hot blast exhaust port 9a are prepared in the base of a heating furnace, hot blast ventilation room 5a is prepared in the bottom of the base of a heating furnace, and the heating heater 6 and the blower fan 7 are arranged in this hot blast ventilation room 5a.

[0053] In the manufacturing installation of the uranium trioxide particle of a configuration of being shown in drawing 2, the air heated at the heating heater 6 within hot blast ventilation room 5a prepared in the bottom of the base of a heating furnace serves as hot blast, and is sent out in a heating furnace from hot blast ventilation opening 4a with a blower fan 7. By the ventilation direction adjustment wings 8 and 10, like the case of the manufacturing installation shown in drawing 1, the sent-out hot blast is adjusted to a parallel flow, and heats and roasts the heavy uranic acid ammonium particle in the container 3 for roast.

[0054] The same operation effectiveness as the manufacturing installation shown in drawing 1 also in the manufacturing installation shown in drawing 2 is done so.

[0055] The manufacturing installation of the uranium trioxide particle which comes to arrange the container for roast formed at the wire gauze as a container for roast to the heating interior of a room is shown in drawing 4 in \*\* type.

[0056] The place where the manufacturing installation 1 of the uranium trioxide particle shown in drawing 4 is different from the manufacturing installation 1 of the uranium trioxide particle shown in drawing 2 Instead of arranging two or more dished containers 3 for roast in the shape of a plate in a heating furnace 2 Container 3C for roast made from a wire gauze formed in the heating furnace 2 tubed [ the tubed cross section which intersects perpendicularly with an axis as shown in drawing 5 is a hexagon-like ] is arranged so that it may become parallel to the base in a heating furnace 2 about the axis, when rotating the shaft of said container 3C for roast through a driving force means of communication 12, for example, a chain, or a pulley, the driving source 11, for example, the motor, arranged out of a heating furnace 2, container 3C for roast itself can rotate centering on a shaft — it comes out.

[0057] In this case, the eye of the wire gauze in container 3C for roast made from this wire gauze is adjusted to the magnitude which cannot pass a uranium trioxide particle.

[0058] And in the manufacturing installation shown in this drawing 4, the hot blast adjusted to the parallel air current by the ventilation direction adjustment wings 8 and 10 is sprayed on container 3C for roast made from this wire gauze, and hot blast contacts a heavy uranic acid ammonium particle through the eye of a wire gauze.

Moreover, since this container 3C for roast is rotating, it will be heated by hot blast, being agitated and the heavy uranic acid ammonium particle in container 3C for roast being agitated within container 3C for roast, as shown in drawing 5. Therefore, while hot blast will be sprayed on each heavy uranic acid ammonium particle by homogeneity and partial heating by hot blast is prevented, are recording of the heat generated when the high polymer in a heavy uranic acid ammonium particle decomposes is lost, and partial heating by this accumulation is also prevented.

[0059] As a rotational frequency of the rotating container for roast, about 4 rpm - 10rpm are desirable. If it is ten or more rpm, the front face of a heavy uranic acid ammonium particle can be damaged in many cases, and if it is four or less rpm, churning effectiveness can worsen, and generation of heat inside a heavy uranic acid ammonium particle group cannot be made to cool.

[0060] If it is made into twice to 3 times of the bulk of a heavy uranic acid ammonium particle, the volume of a multiple column container can fully be agitated and its volume efficiency is also good. Volume efficiency worsens in 3 or more times.

[0061] When using such a box-like or tubed container as a container for roast, it is simple rather than it holds that what is necessary is just to only put in a heavy uranic acid ammonium particle in a container, accumulating a heavy

uranic acid ammonium particle on the dished or plate-like container for roast. Furthermore, like [ in the case of the plate-like container for roast ], a particle is dispersed, or there is also no danger of making contamination by the uranium of the electric furnace circumference expanding, accidentally, and it is efficient.

[0062] The container for roast in the manufacturing installation shown in drawing 4 may not be limited to the box of a cross-section hexagon as shown in drawing 5, and may be the box of a cross-section square, for example, may be the box of other cross-section polygons, and may be container 3D for roast of the tube-like object of a cross-section round shape as shown in drawing 6 further. Moreover, if it is in the container for roast of the box of a cross-section polygon or a cross-section round shape, or a tube-like object, as shown in drawing 6, it is desirable to prepare baffle 3E in the wall.

[0063] If baffle 3E is prepared and the container for roast will be rotated focusing on the axis, churning of the heavy uranic acid ammonium particle held in the interior will be promoted, consequently hot blast will hit each heavy uranic acid ammonium particle at homogeneity, and partial heating by hot blast will be prevented, and it will be prevented one layer of partial heating nearby by said accumulation.

[0064] In addition, in drawing 5 and drawing 6, it is the revolving shaft which 3F show.

[0065]

[Example] Hereafter, the example of this invention is explained.

[0066] (Example 1)

The undiluted solution which added 30g [ per liter ] polyvinyl alcohol in 16l. of heavy uranic acid ammonium water solutions which are the preparation uranium concentration of 250g/l. of a heavy uranic acid ammonium particle, and adjusted the viscosity in 30 degrees C to them at 92cp was prepared.

[0067] This undiluted solution was dropped from the oscillating nozzle, the drop was generated, and it was made to gel in aqueous ammonia. It was made to gel completely, dried and considered as the heavy uranic acid ammonium particle with a diameter of about 1.4mm.

[0068] When the amount of uranium was made into 4 kg-U per one batch by the heavy uranic acid ammonium particle with a diameter of about 1.4mm, the bulk was about 9,000 cc.

[0069] As a container for roast {container for roast} roast, die length of one side of a hexagonal prism used the container of the shape of a hexagonal prism 45cm and whose volume the die length of 15cm and shaft orientations is about 27000 cc.

[0070] It is UO<sub>3</sub> when a heavy uranic acid ammonium particle with a diameter of about 1.4mm is roasted. Since the diameter of a particle was set to about 1.2mm, the whole hexagonal prism-like container was formed at the wire gauze of 1mm of openings.

[0071] The revolving shaft was used as the hollow shaft with a bore of 5cm in order to make easy the inflow of the hot blast into a hexagonal prism-like container, and an outflow.

[0072] As a {heating furnace} heating furnace, the electric furnace (hot-blast cycloid-type electric-furnace HP-60 mold: product made from Asahi Science) of a hot blast cycloid type was used.

[0073] {Roast} The heavy uranic acid ammonium particle of all amount [ of 4kg ] of uranium-U was filled up with and roasted with the hot blast cycloid type electric furnace as shown in drawing 4 using the container of the shape of an above hexagonal prism. The rotational frequency of the container at this time is 6rpm, and carried out the temperature up over 5 hours from a room temperature to 500 degrees C.

[0074] When whenever [ furnace temperature ] reached about 150 degrees C, the high molecular compound in a heavy uranic acid ammonium particle pyrolyzed, the particle itself generated heat with the heat of decomposition, but since a particle was agitated moderately and was relatively cooled by hot blast, the rapid temperature rise inside a particle group was controlled.

[0075] Consequently, it is uniform UO<sub>3</sub>, without being in the middle of roast, and a particle's breaking and a defect \*\*\*\*\* (ing). The particle was able to be manufactured.

[0076] (Example 2) It roasted like the example 1 except the total amount of uranium having filled up with and roasted the heavy uranic acid ammonium particle of 6 kg-U using the heavy uranic acid ammonium particle prepared like the example 1.

[0077] Consequently, it is uniform UO<sub>3</sub>, without being in the middle of roast, and a particle's breaking and a defect \*\*\*\*\* (ing). The particle was able to be manufactured.

[0078] (Evaluation) Make it far simpler for a hexagonal prism-like container to fill up the conventional container for roast with a particle rather than it carries out the about five-layer laminating of the particle to homogeneity. Moreover, one side of a hexagonal prism-like container is a lid, receipts and payments of a particle can be performed easily, and workability is good. Moreover, since scattering of a particle can be easily prevented when handling a particle, it excels also in the safety aspect.

[0079]

[Effect of the Invention] It is UO<sub>3</sub> by the approach of this invention, and its equipment. UO<sub>3</sub> which the rapid temperature rise by own generation of heat of a heavy uranic acid ammonium particle is controlled, and is manufactured since a heavy uranic acid ammonium particle will be roasted using the heating furnace of a hot blast supply mold, and supplying hot blast, if a particle is manufactured The crack of a particle and generating of a defect can be prevented, consequently it is uniform UO<sub>3</sub>. A particle can be manufactured.

[0080] Moreover, the container for roast is written at a wire gauze, the particle weight with which it can be filled up even if a gross area is the same as compared with the conventional container for roast increases remarkably, the programming rate at the time of roast can also be made quick, and it is efficient.

---

[Translation done.]



## \* NOTICES \*

JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

---

DESCRIPTION OF DRAWINGS

---

## [Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] Drawing 1 is the approximate account Fig. showing one suitable example of the manufacturing installation of the uranium trioxide particle concerning this invention.

[Drawing 2] Drawing 2 is the approximate account Fig. showing other suitable examples of the manufacturing installation of the uranium trioxide particle concerning this invention.

[Drawing 3] Drawing 3 is the approximate account Fig. showing the container for roast used for the manufacturing installation of the uranium trioxide particle concerning this invention, and the heavy uranic acid ammonium particle held in it.

[Drawing 4] Drawing 4 is the approximate account Fig. equipped with the pivotable container for roast which is the example of suitable others of the equipment concerning this invention showing the manufacturing installation of a uranium trioxide particle.

[Drawing 5] Drawing 5 is the cross-section explanatory view showing the container for roast of the shape of a hexagonal prism used in the one suitable example of the manufacturing installation of the uranium trioxide particle concerning this invention.

[Drawing 6] Drawing 6 is the cross-section explanatory view showing the container for roast of the cross-section round shape used in the one suitable example of the manufacturing installation of the uranium trioxide particle concerning this invention.

[Drawing 7] Drawing 7 is the cross-section explanatory view showing the conventional heating furnace for roast.

[Drawing 8] Drawing 8 is the cross-section explanatory view showing the condition of having carried out the laminating of the heavy uranic acid ammonium particle thickly in the container for roast used for the conventional heating furnace for roast.

[Drawing 9] Drawing 9 is a sectional view at the time of carrying out the laminating of the heavy uranic acid ammonium particle to the container for roast thinly.

[Drawing 10] Drawing 10 is the graphical representation showing the result of having carried out differential thermal analysis for the heavy uranic acid ammonium particle.

## [Explanation of agreement]

1 Manufacturing Installation of Uranium Trioxide Particle

2 Heating Furnace

3 Container for Roast

3A Heavy uranic acid ammonium particle

3B Opening

3C The container for roast

3F Revolving shaft

4 Hot Blast Ventilation Opening

4a Hot blast ventilation opening

5 Hot Blast Ventilation Room

6 Heating Heater

7 Blower Fan

8 The Ventilation Direction Accommodation Wing

9 Hot Blast Exhaust Port

9a Hot blast exhaust port

10 The Ventilation Direction Accommodation Wing

---

[Translation done.]

## \* NOTICES \*

JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

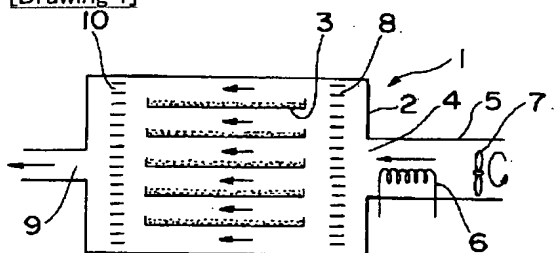
1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.

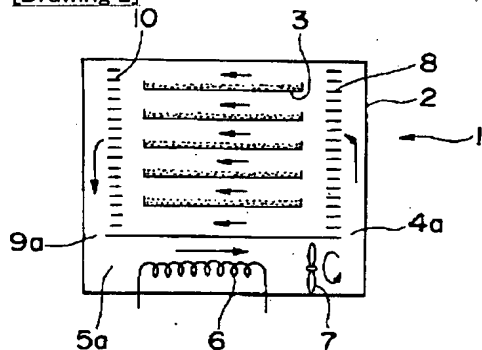
3. In the drawings, any words are not translated.

## DRAWINGS

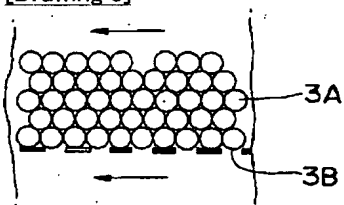
[Drawing 1]



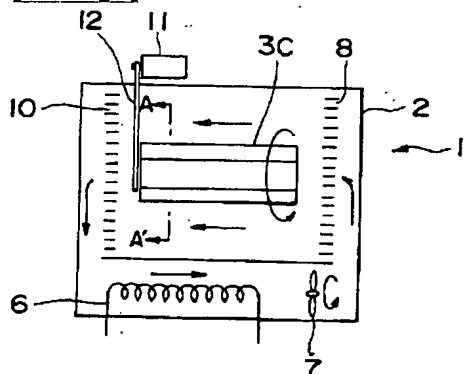
[Drawing 2]



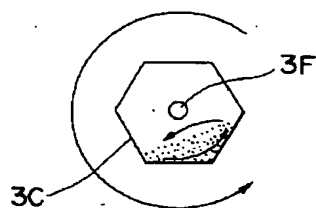
[Drawing 3]



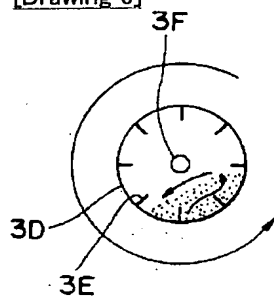
[Drawing 4]



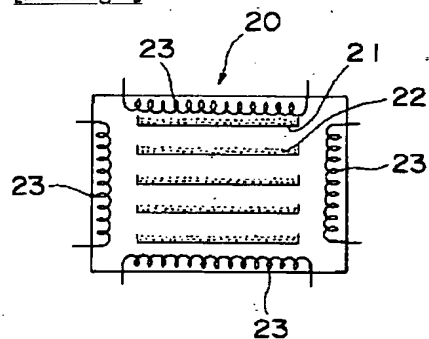
[Drawing 5]



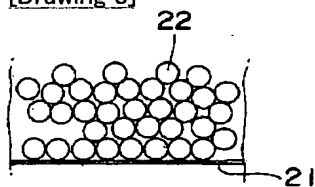
[Drawing 6]



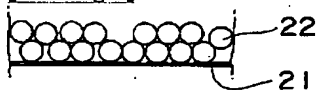
[Drawing 7]



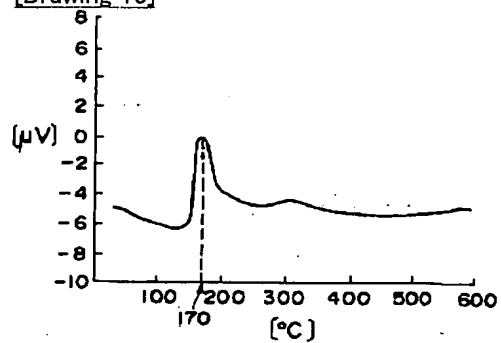
[Drawing 8]



[Drawing 9]



[Drawing 10]



[Translation done.]

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平6-191851

(43)公開日 平成 6 年(1994) 7 月12日

(51)Int.Cl. <sup>5</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 1 C 43/01	A			
G 2 1 C 21/02	J	8204-2G		

審査請求 未請求 請求項の数 4 (全 7 頁)

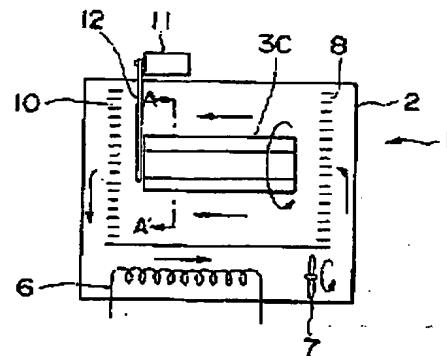
(21)出願番号	特願平4-344016	(71)出願人	000165697 原子燃料工業株式会社 東京都港区虎ノ門四丁目3番13号
(22)出願日	平成 4 年(1992)12月24日	(72)発明者	吉本田 秀治 茨城県那珂郡東海村大字村松1220-13
		(74)代理人	弁理士 福村 直樹

(54)【発明の名称】 三酸化ウラン粒子の製造方法及びその製造装置

(57)【要約】

【目的】 この発明は、焙焼時における電気炉内の急激な温度上昇を抑制して、 $UO_2$  粒子の割れや欠陥の発生を防止し、均一な $UO_2$  粒子を製造することのできる $UO_2$  粒子の製造方法及びその装置を提供することを目的としている。

【構成】 この発明は、電気炉内で、金網よりなる回転可能な焙焼用容器に入れた重ウラン酸アンモニウム粒子に、温度制御した熱風を供給しながら焙焼を行ない三酸化ウラン粒子を製造する。三酸化ウラン粒子の製造方法及びその装置である。



(2)

特開平6-191851

1

2

【特許請求の範囲】

【請求項1】 加熱炉内で、焙焼用容器に入れた重ウラン酸アンモニウム粒子に、熱風を一方から送風することを特徴とする三酸化ウラン粒子の製造方法。

【請求項2】 炉内に多段に配置された焙焼用容器と、前記焙焼用容器に向けて一定方向から熱風を供給する熱風供給手段とを有することを特徴とする三酸化ウラン粒子の製造装置。

【請求項3】 前記焙焼容器は、重ウラン酸アンモニウム粒子群を保持する面に、熱風の通過可能で三酸化ウラン粒子の通過不可能な空隙が形成されてなる前記請求項2に記載の三酸化ウラン粒子の製造装置。

【請求項4】 炉内に回転可能に配置されると共に、熱風の通過可能で三酸化ウラン粒子の通過不可能な空隙を有した焙焼用容器と、前記焙焼用容器に向けて一定方向から熱風を供給する熱風供給手段とを有することを特徴とする三酸化ウラン粒子の製造装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は三酸化ウラン粒子の製造方法及びその装置に関し、更に詳しくは、三酸化ウラン粒子製造工程における、焙焼時の温度コントロールを容易にして、三酸化ウラン粒子の割れや欠陥の発生を防止することのできる、三酸化ウラン粒子の製造方法及びその製造装置に関する。

【0002】

【従来の技術と発明が解決しようとする課題】 従来、高温ガス冷却原子炉等に装架する球状三酸化ウラン（ $UO_3$ ）粒子を製造する工程としては、次のような方法が知られている。

【0003】 まず、硝酸ウランの液滴をアンモニア性水溶液中でゲル化させて重ウラン酸アンモニウム粒子を生成し、これを乾燥させた後、空気中で約400～600℃で焙焼して三酸化ウラン（ $UO_3$ ）粒子とする。

【0004】  $UO_3$  粒子は、最終的には、水素雰囲気中、約1,600℃で還元・焼結して球状 $UO_2$  粒子となる。

【0005】 液滴の生成を容易にするため、通常、硝酸ウランにポリビニルアルコールやポリエチレングリコール等の高分子化合物を添加して、粘度等を調整する。

【0006】 このため、焙焼時には重ウラン酸アンモニウム粒子内の高分子化合物の分解熱によって粒子自身が発熱するので、これが焙焼時の温度コントロールを困難にして、さらに $UO_3$  粒子の割れや欠陥の原因となっている。

【0007】 図7に示すように、従来の焙焼用電気炉20の場合、焙焼用電気炉20内に、棚段状に設置した焙焼用トレイ21上に重ウラン酸アンモニウム粒子22を収容し、焙焼用電気炉20の天井、底面及び内周壁にそれぞれ配設された加熱ヒータ23で前記重ウラン酸アン

モニウム粒子22を加熱、焙焼して $UO_3$  粒子にする。焙焼時の温度コントロール、特に昇温速度は高分子化合物の種類や添加量によって異なる。

【0008】 例えば、ウランの重量に対して20重量％の割合になるように、ポリビニルアルコールを添加することにより調製した重ウラン酸アンモニウム粒子の場合は、室温から450℃まで約6～7時間で昇温する。これ以上昇温時間を長くしても品質上の問題は起こらない。

【0009】 上記の昇温速度で約380℃まで昇温すると、重ウラン酸アンモニウム粒子は三酸化ウラン（ $UO_3$ ）粒子になり、約600℃にまで昇温し過ぎると、八酸化三ウラン（ $U_8O_{21}$ ）粒子となる。

【0010】 一方、 $UO_3$  を $UO_2$  にするとき、炭素が多いとクラックが入り易いことから、 $UO_3$  粒子中の残留炭素量を100ppmまで下げることが望ましく、そのためには、前記380℃よりも高い温度である450～550℃まで昇温させることが好ましい。

【0011】 とくろが、重ウラン酸アンモニウム粒子中の高分子化合物は、約150℃から分解が始まり、このときの分解熱によって、重ウラン酸アンモニウム粒子自身が発熱する。

【0012】 図10に重ウラン酸アンモニウム粒子を焙焼したときの示差熱分析の例を示したが、その発熱ピークは約170℃である。

【0013】 図8に示したように、重ウラン酸アンモニウム粒子22を5層以上に厚く積層させて焙焼した場合、電気炉内温度が170℃のとき、最下層付近の重ウラン酸アンモニウム粒子21の周囲の温度は、重ウラン酸アンモニウム粒子自身の発熱によって、約250～300℃まで急激に上昇する。この急激な温度上昇によって、重ウラン酸アンモニウム粒子は割れたり欠陥が発生する。

【0014】 そこで、図9に示したように、従来では、焙焼用トレイ21上の重ウラン酸アンモニウム粒子22を1～2層程度に薄く積層させることにより、熱の滞留を防止することが行なわれている。

【0015】 しかしながら、この場合、焙焼用トレイ21の総面積が増加するため、電気炉内の棚段の数が増えるので、電気炉の内容容積を十分に大きくしなければならない。この結果、電気炉内を均一に加熱すること（均熱性）ができなくなり、このことが $UO_3$  粒子の品質を下げる原因となっている。

【0016】 また、従来の焙焼用トレイはトレイ底板が平板であり、このことが、一層、焙焼用トレイの総面積の増加の要因となり、炉内における均熱性の低下の原因となっている。

【0017】 さらに、図7に示した焙焼用電気炉の場合、自然対流型の電気炉であるので、炉内の均熱性を向上させることが困難であり、また、粒子中の高分子化合物

(3)

特開平6-191851

3

物の分解熱の影響を受け易い。

【0018】本発明は、前記事情に基づいてなされたものである。

【0019】すなわち、本発明の目的は、焙焼時における電気炉内の急激な温度上昇を抑制して、 $UO_2$  粒子の割れや欠陥の発生を防止し、均一な $UO_2$  粒子を製造することのできる $UO_2$  粒子の製造方法及びその装置を提供することにある。

【0020】

【前記課題を解決するための手段】前記課題を解決するための請求項1に記載の発明は、加熱炉内で、焙焼用容器に入れた重ウラン酸アンモニウム粒子に、熱風を一方から送風することを特徴とする三酸化ウラン粒子の製造方法である。

【0021】請求項2に記載の発明は、炉内に多段に配置された焙焼用容器と、前記焙焼用容器に向けて一定方向から熱風を供給する熱風供給手段とを有することを特徴とする三酸化ウラン粒子の製造装置である。

【0022】請求項3に記載の発明は、前記焙焼容器は、その底面に、熱風の通過可能で三酸化ウラン粒子の通過不可能な空隙を有してなる前記請求項2に記載の三酸化ウラン粒子の製造装置である。

【0023】請求項4に記載の発明は、炉内に回転可能に配置されると共に、熱風の通過可能で三酸化ウラン粒子の通過不可能な空隙を有した焙焼用容器と、前記焙焼用容器に向けて一定方向から熱風を供給する熱風供給手段とを有することを特徴とする三酸化ウラン粒子の製造装置である。

【0024】以下、本発明を更に詳しく説明する。

【0025】原料として使用する重ウラン酸アンモニウム粒子は、従来より公知の方法を用いて得ることができる。

【0026】例えば、バインダーとしてポリビニルアルコールやポリエチレングリコール等の高分子化合物を硝酸ウラニルに添加することにより所望の粘度を有する原液を先ず調製する。

【0027】この硝酸ウラニルの原液を、例えば振動ノズルから滴下して硝酸ウラニルの液滴を生成し、例えばアンモニア性水溶液中でゲル化させる。ゲル化後に乾燥すると、直径が約1.0～2.0mmである球状の重ウラン酸アンモニウム粒子が得られる。ただし、この重ウラン酸アンモニウム粒子の直径は、最終製品である球状二酸化ウラン粒子の直径と滴下原液中のウラン濃度によって決定される。例えば、直径0.6mmの球状二酸化ウラン粒子を製造するために、ウラン濃度220gU/リットルの滴下原液を使用すると、重ウラン酸アンモニウム粒子の直径は約1.8mmになる。

【0028】本発明の方法においては、加熱炉内に配置された焙焼用容器内に収容された重ウラン酸アンモニウム粒子に、強制的に一方から熱風を吹きつけることに

4

より、前記重ウラン酸アンモニウム粒子を焙焼する。

【0029】重ウラン酸アンモニウム粒子に吹きつける熱風の温度は、適正に制御されることが望ましい。

【0030】この発明の方法においては、熱風の温度の制御は、熱風の昇温速度を制御することと、熱風の最高温度を設定した温度に維持するように熱風の温度を制御することとを意味する。

【0031】熱風の昇温速度については、例えば図10の示唆熱分析の結果からも分かるように、熱風温度が約170℃のときに重ウラン酸アンモニウム粒子はバインダーなどの添加剤の分解熱によって急速に温度が上昇し、約250℃～350℃にまで達する可能性がある。重ウラン酸アンモニウム粒子が異常に温度上昇しているときは、この重ウラン酸アンモニウム粒子は、熱風によって相対的に冷却されることになる。

【0032】重ウラン酸アンモニウムの温度の急上昇は、重ウラン酸アンモニウム粒子中のバインダーを初めとする添加剤の種類やその添加量によって異なるが、一般的にいうと、バインダーである高分子樹脂化合物の重合度が高い程、また、添加量が多い程、重ウラン酸アンモニウム粒子の発熱量が大きい。したがって、このような高分子樹脂化合物をバインダーとして含有する重ウラン酸アンモニウム粒子の温度が急上昇するときにはこの急激な温度上昇を抑制するために、熱風によって重ウラン酸アンモニウム粒子を冷却することができるよう、熱風の温度上昇速度を適宜に調整することが重要である。たとえば、重ウラン酸アンモニウム粒子の発熱ピークとなる約170℃付近では、熱風の昇温速度を下げても重ウラン酸アンモニウム粒子を冷却し、所定時間の経過後に熱風の昇温速度を上げるようにしても良い。重ウラン酸アンモニウム粒子の焙焼は、バッチ単位で行われるので、1バッチの焙焼が24時間以内に完了すれば良いので、熱風の昇温パターンを種々に変更する自由度は比較的大きい。そして、昇温パターンをどのように設定するかは、重ウラン酸アンモニウム粒子の質、量、加熱炉の規模などにより適宜に選択することができる。

【0033】熱風の最高温度は、 $UO_2$  粒子の残留炭素量を100ppm以下に下げることができる温度であることが必要であり、通常450～550℃の範囲内の温度である。最高温度が600℃を超えると $UO_2$  は $U_2O_3$  になり始めるので、この時点で残留炭素量が100ppm以上であればその組成の重ウラン酸アンモニウム粒子では品質の良い球状 $UO_2$  粒子を製造するのが困難になる。

【0034】なお、設定温度に対して±5℃程度の誤差は製品の品質に影響はない。

【0035】熱風による重ウラン酸アンモニウム粒子の加熱時間は、焙焼しようとする重ウラン酸アンモニウム粒子の量によるので一概に決定することはできない。要するに、重ウラン酸アンモニウム粒子中の高分子物質を

(4)

特開平6-191851

5

燃焼させると共に重ウラン酸アンモニウムが $UO_2$ に分解されるに十分な時間を適宜に決定するのが良い。

【0036】熱風の流速としては、焙焼しようとする重ウラン酸アンモニウム粒子の量にもよるが、通常2~10 cm/secである。熱風の流速がこの範囲内にあると、重ウラン酸アンモニウム粒子の焙焼に際し、重ウラン酸アンモニウム粒子中の高分子物質の燃焼による蓄熱を有効に除去することができる。又、熱風の流速が2 cm/secよりも小さいと、焙焼する重ウラン酸アンモニウム粒子を有効に冷却することができなくなるがあり、又、一方、流速が10 cm/secを超える場合、流速を大きくする技術的意味合いを見いだせないことがある。

【0037】重ウラン酸アンモニウム粒子に対して熱風を吹き付ける方向としては、特に制限がないのであるが、例えば重ウラン酸アンモニウム粒子群を平らな面に広げた状態にして加熱炉内に配置されるときには、その平らな面に平行に熱風が通過するように、熱風の送風方向を決定するのが良い。

【0038】熱風は、加熱炉内を吹き抜けるように、あるいは、加熱炉内で循環するように、重ウラン酸アンモニウム粒子に吹き付けるのが良い。

【0039】この重ウラン酸アンモニウム粒子の焙焼は通常酸化性雰囲気で行われる。その酸化性雰囲気としては、空気雰囲気あるいは、酸素と他の不活性ガスとの混合ガス雰囲気を挙げることができる。もっとも、通常の場合、焙焼時の酸化性雰囲気として空気が選択されている。したがって、熱風としても、通常は加熱空気である。

【0040】熱風を形成するための加熱手段としては所定の温度を實現することができるのであれば特に制限がなく、通常の電気ヒータ等を挙げることができる。

【0041】次に本発明の方法を実施するのに好適な、本発明の製造装置を図面を参照しながら説明する。

【0042】図1に示すように、本発明の一例である三酸化ウラン粒の製造装置1は、加熱炉2内に複数の焙焼用容器3を配置している。

【0043】この焙焼用容器は、加熱炉内で、棚段状に配列される。又、図3に示すように、この焙焼用容器3は、重ウラン酸アンモニウム粒子3Aを保持する面に、生成する三酸化ウランを通過不可能にすると共に気体の流通を可能にする空隙3Bを有してなるのが好ましい。焙焼用容器における重ウラン酸アンモニウム粒子を保持する面に特に前記空隙が設けられていなくても、焙焼用容器に収容した重ウラン酸アンモニウム粒子に熱風を吹き付けるだけで、重ウラン酸アンモニウム粒子中に存在する高分子物質の燃焼による蓄熱を除去することができるのであるが、前述したように、重ウラン酸アンモニウム粒子を保持する面に前記空隙が設けられていると、空隙から侵入した熱風が重ウラン酸アンモニウム粒子間を

5

流通することにより、前記蓄熱をより一層効果的に除去することができる。

【0044】このような空隙を有する焙焼用容器としては、例えば、重ウラン酸アンモニウム粒子を収容する平らな底面に、三酸化ウラン粒の通過不可能な大きさの多数の貫通孔を設けてなる皿状あるいは平板状の容器、重ウラン酸アンモニウム粒子を収容する平らな底面に大面積の開口部を設け、その開口部に、三酸化ウラン粒の通過不可能な大きさの目を有する金網を張設してなる皿状あるいは平板状の容器、三酸化ウラン粒の通過不可能な目を有する金網で形成してなる皿状、箆状あるいは筒状の容器などを挙げることができる。

【0045】又、この焙焼用容器は、図1に示すように棚段状に加熱炉内に静置されていても良いのであるが、場合によっては、例えば皿状あるいは平板状の焙焼用容器を揺動しても良く、また筒状の容器においては、その軸心を中心にして焙焼用容器を回転するようにしても良い。

【0046】図1に示すように、三酸化ウラン粒の製造装置1は、その加熱炉2の一つの壁に熱風送風口4が設けられている。その熱風送風口4には、熱風送風室5が連続している。熱風送風室5内には、電気ヒータ6と送風ファン7とが配置される。この電気ヒータ6は図示しない制御装置によりその送電量が制御される。したがって、この熱風送風室5内から加熱炉2内に所望の温度の熱風を送風することができるようになっている。

【0047】図1に示すように、三酸化ウラン粒の製造装置1には、前記熱風送風口4を設けた加熱炉内壁と前記焙焼用容器3との間に送風方向調節羽根8が配設される。この送風方向調節羽根8により、棚段状に配置された複数の焙焼用容器のいずれにも均一に熱風が吹きつけられるようにされる。

【0048】図1に示すように、三酸化ウラン粒の製造装置1には、前記熱風送風口4を設けた加熱炉内壁に向かう内壁に、熱風排出口9が設けられる。そして、この熱風排出口9と焙焼用容器3との間に、別の送風方向調節羽根10が設置されている。

【0049】上記構成の三酸化ウラン粒の製造装置1においては、電気ヒータ6で加熱された空気が送風ファン7により、熱風送風口4から加熱炉2内に送り出され、送風方向調節羽根8及び10により送風方向を調整された熱風が焙焼用容器3に向かって流通し、焙焼用容器3を通過した熱風は熱風排出口9から加熱炉2外へと送り抜けていく。

【0050】このとき、焙焼用容器3は、熱風送風口4と熱風排出口9との間で形成される熱風の気流中に配列された状態になっていて、熱風によって重ウラン酸アンモニウム粒子が加熱される。重ウラン酸アンモニウム中の高分子物質は加熱により分解する。その熱分解により発生する熱量は、熱風気流により冷却され、重ウラン酸



(5)

特開平6-191851

7

アンモニウム粒子中に蓄熱することが防止される。

【0051】図1に示す態様の製造装置は、加熱炉外から加熱炉内に熱風が供給され、加熱炉内の熱風が加熱炉外へと排出されるので、熱風ワンスルー型の製造装置と言える。この発明の三酸化ウラン粒子の製造装置は、図1に示される方式の製造装置に限定されない。例えば、図2に示すような、熱風循環型の製造装置もこの発明の方法を好適に実施することのできる装置である。

【0052】図2に示すように、三酸化ウラン粒子の製造装置が図1に示す製造装置と相違するところは、加熱炉内壁に熱風送風口及び熱風排出口が設けられず、加熱炉の底面に熱風送風口4a及び熱風排出口9aが設けられ、加熱炉の底面に熱風送風口5aが設けられ、この熱風送風口5a内に加熱ヒータ6及び送風ファン7が配置されていることである。

【0053】図2に示す構成の三酸化ウラン粒子の製造装置においては、加熱炉の底面に設けられた熱風送風口5a内で加熱ヒータ6で加熱された空気が熱風となって送風ファン7により熱風送風口4aから加熱炉内に送出される。送出された熱風は、送風方向調整羽根8及び10により、図1に示す製造装置の場合と同様に、平行流に調整され、焙焼用容器3中の重ウラン酸アンモニウム粒子を加熱し、焙焼する。

【0054】図2に示す製造装置においても図1に示す製造装置と同様の作用効果を奏する。

【0055】図4には、焙焼用容器として金網で形成された焙焼用容器を加熱室内に配置してなる三酸化ウラン粒子の製造装置を模式的に示している。

【0056】図4に示す三酸化ウラン粒子の製造装置1が、図2に示す三酸化ウラン粒子の製造装置1と相違するところは、加熱炉2内に棚状に複数の皿状の焙焼用容器3を配置する代わりに、加熱炉2内に、図5に示すような、軸線に直交する断面が六角形状である筒状に形成された金網製の焙焼用容器3Cが、その軸線を加熱炉2内の底面に平行になるように配置されていること、加熱炉2外に配置された駆動部11例えばモータが駆動力伝達手段12例えばチェーンあるいはブーリーを介して前記焙焼用容器3Cの軸を中心にして回転することにより、焙焼用容器3C自体が軸を中心にして回転することができるようになっていること、である。

【0057】この場合、この金網製の焙焼用容器3Cにおける金網の目は、三酸化ウラン粒子の通過が不可能な大きさに調整されている。

【0058】そして、この図4に示す製造装置においては、送風方向調整羽根8及び10により平行な気流に調整された熱風が、この金網製の焙焼用容器3Cに吹きつけられ、金網の目を通して熱風が重ウラン酸アンモニウム粒子に接触する。また、この焙焼用容器3Cは回転しているので、焙焼用容器3C内の重ウラン酸アンモニウム粒子は、図5に示すように、焙焼用容器3C内で攪拌

8

され、攪拌されつつ熱風で加熱されることになる。したがって、熱風が個々の重ウラン酸アンモニウム粒子に均一に吹きつけられることになって、熱風による部分的な加熱が防止されると共に、重ウラン酸アンモニウム粒子内の高分子物質が分解することにより発生する熱の蓄積がなくなり、この蓄熱による部分的加熱も防止される。

【0059】回転する焙焼用容器の回転数としては、約4rpm～10rpmが好ましい。10rpm以上であれば重ウラン酸アンモニウム粒子の表面を傷付けることが多く、また、4rpm以下であれば攪拌効率が悪くなって、重ウラン酸アンモニウム粒子群内部の発熱を冷却させることができないことがある。

【0060】多角柱容器の容積は、重ウラン酸アンモニウム粒子の容積の2倍～3倍とすれば十分に攪拌でき容積効率もよい。3倍以上では容積効率が悪くなる。

【0061】焙焼用容器としてこのような箱状もしくは筒状の容器を使用する場合、重ウラン酸アンモニウム粒子を単に容器内に入れるだけでよく、皿状あるいは平板状の焙焼用容器に重ウラン酸アンモニウム粒子を積み重ねながら収容するよりも、簡便である。さらに、平板状の焙焼用容器の場合のように、誤って粒子を飛散させてしまったり、電気炉周辺のウランによる汚染を拡大させたりする危険性もなく、効率的である。

【0062】図4に示す製造装置における焙焼用容器は、図5に示すような、断面六角形の箱体に限定されるものではなく、例えば断面四角形の箱体であっても、又その他の断面多角形の箱体であっても良く、さらに、図6に示すような断面円形の筒状体の焙焼用容器3Dであっても良い。又、断面多角形あるいは断面円形の箱体もしくは筒状体の焙焼用容器にあっては、図6に示すように、その内壁に邪魔板3Eを設けるのが好ましい。

【0063】邪魔板3Eを設けておくと、焙焼用容器をその軸線を中心にして回転させると、内部に収容されている重ウラン酸アンモニウム粒子の攪拌が促進され、その結果、各重ウラン酸アンモニウム粒子に熱風が均一に当たることになり、熱風による部分加熱が防止され、又前記蓄熱による部分加熱もより一層防止される。

【0064】なお、図5及び図6において、3Fで示すのは回転軸である。

【0065】

【実施例】以下、本発明の実施例を説明する。

【0066】（実施例1）

重ウラン酸アンモニウム粒子の調製

ウラン濃度250g/リットルである重ウラン酸アンモニウム水溶液16リットルに、リットル当たり30gのポリビニルアルコールを添加して、30℃での粘度を92cpに調整した原液を調製した。

【0067】この原液を振動ノズルから滴下して液滴を生成し、アンモニア水中でゲル化させた。完全にゲル化させて乾燥し、直径約1.4mmの重ウラン酸アンモニ

ウム粒子とした。

【0068】直径約1.4mmの重ウラン酸アンモニウム粒子で1バッチ当たりウラン量を4kg-Uとした場合、その嵩容積は約9,000ccであった。

【0069】焙焼

【焙焼用容器】焙焼用容器として、六角柱の一边の長さが15cm、軸方向の長さが45cm、容積が約27000ccである六角柱状の容器を用いた。

【0070】直径約1.4mmの重ウラン酸アンモニウム粒子を焙焼するとUO<sub>3</sub>、粒の直径は約1.2mmとなるので、六角柱状の容器全体は目開き1mmの金網で形成された。

【0071】六角柱状の容器内への熱風の流入、流出を容易にするため、回転軸は内径5cmの中空軸とした。

【0072】【加熱炉】加熱炉として、熱風循環型の電気炉（熱風循環型電気炉HP-60型：旭科学（株）製）を用いた。

【0073】【焙焼】上記の六角柱状の容器を用いて図4に示すような熱風循環型電気炉で、全ウラン量4kg-Uの重ウラン酸アンモニウム粒子を充填し、焙焼した。このときの容器の回転数は6rpmで、室温から500℃まで5時間かけて昇温させた。

【0074】炉内温度が約150℃に到達すると重ウラン酸アンモニウム粒子内の高分子化合物が熱分解し、その分解熱によって、粒子自身が発熱するが、粒子は適度に攪拌され熱風によって相対的に冷却されるため、粒子群内部の急激な温度上昇が抑制された。

【0075】この結果、焙焼途中で粒子が割れたり、また欠陥が発生することなく、均一なUO<sub>3</sub>粒子を製造することができた。

【0076】（実施例2）実施例1と同様にして調製された重ウラン酸アンモニウム粒子を用いて、全ウラン量が6kg-Uの重ウラン酸アンモニウム粒子を充填して焙焼した以外は、実施例1と同様にして焙焼した。

【0077】この結果、焙焼途中で粒子が割れたり、また欠陥が発生することなく、均一なUO<sub>3</sub>粒子を製造することができた。

【0078】（評価）従来の焙焼用容器に、粒子を均一に約5層積層させるよりも、六角柱状の容器に、粒子を充填させるほうが、はるかに簡便であった。また、六角柱状の容器の一边が蓋になっており、粒子の出し入れが容易にでき、作業性がよい。また、粒子をハンドリングするときに、粒子の飛散を容易に防止することができるので、安全面でも優れている。

【0079】

【発明の効果】本発明の方法及びその装置によりUO<sub>3</sub>粒子を製造すると、熱風供給型の加熱炉を使用して、熱風を供給しながら、重ウラン酸アンモニウム粒子を焙焼することから、重ウラン酸アンモニウム粒子自身の発熱による急激な温度上昇が抑制されて、製造されるUO<sub>3</sub>

粒子の割れや欠陥の発生を防止することができ、その結果、均一なUO<sub>3</sub>粒子を製造することができる。

【0080】また、焙焼用容器を金網にしたため、従来の焙焼用容器に比較して、総面積が同じであっても、充填できる粒子量が著しく増加し、焙焼時の昇温速度も速くでき、効率がよい。

【図面の簡単な説明】

【図1】図1は、本発明に係る三酸化ウラン粒子の製造装置の好適な一実施例を示す概略説明図である。

【図2】図2は、本発明に係る三酸化ウラン粒子の製造装置の好適な他の実施例を示す概略説明図である。

【図3】図3は、本発明に係る三酸化ウラン粒子の製造装置に使用される焙焼用容器とそれに収容した重ウラン酸アンモニウム粒子とを示す概略説明図である。

【図4】図4は、本発明に係る装置の好適なその他の実施例であるところの、回転可能な焙焼用容器を備えた、三酸化ウラン粒子の製造装置を示す概略説明図である。

【図5】図5は、本発明に係る三酸化ウラン粒子の製造装置の好適な一実施例で使用される六角柱状の焙焼用容器を示す断面説明図である。

【図6】図6は、本発明に係る三酸化ウラン粒子の製造装置の好適な一実施例で使用される断面円形の焙焼用容器を示す断面説明図である。

【図7】図7は、従来の焙焼用加熱炉を示す断面説明図である。

【図8】図8は、従来の焙焼用加熱炉に使用される焙焼用容器に重ウラン酸アンモニウム粒子を厚く積層した状態を示す断面説明図である。

【図9】図9は、焙焼用容器に重ウラン酸アンモニウム粒子を薄く積層した場合の断面図である。

【図10】図10は、重ウラン酸アンモニウム粒子を示す差熱分析をした結果を示すグラフ図である。

【符合の説明】

1 三酸化ウラン粒子の製造装置

2 加熱炉

3 焙焼用容器

3A 重ウラン酸アンモニウム粒子

3B 空隙

3C 焙焼用容器

3F 回転軸

4 熱風送風口

4a 熱風送風口

5 熱風送風室

6 加熱ヒータ

7 送風ファン

8 送風方向調節羽根

9 熱風排出口

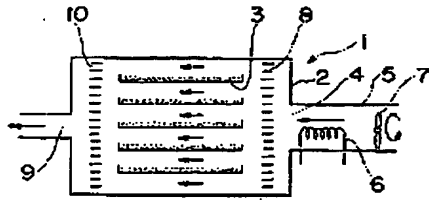
9a 熱風排出口

10 送風方向調節羽根

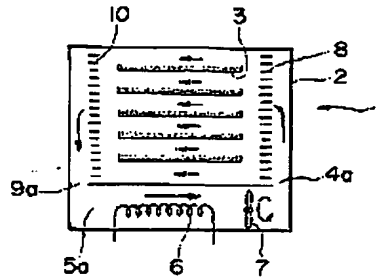
(7)

特開平6-191851

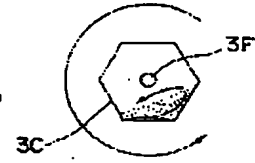
【図1】



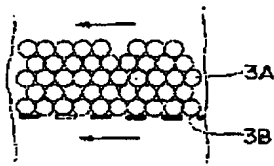
【図2】



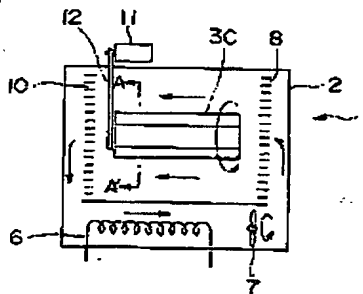
【図5】



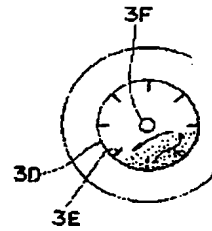
【図3】



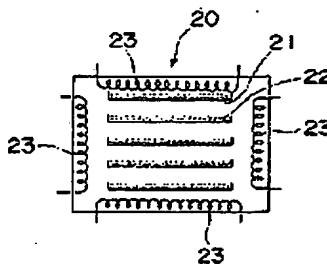
【図4】



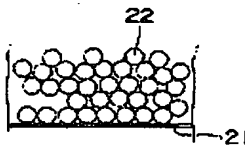
【図6】



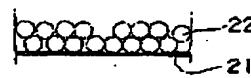
【図7】



【図8】



【図9】



【図10】

